Iranian Food Science and Technology Research Journal
Vol. 17, No. 2, June. July. 2021, p. 287- 297

نشریه پژوهشهای علوم و صنایع غذایی ایران
جلد ۱۷، شماره ۲، خرداد-تیر ۱۴۰۰ ص.۲۹۷-۲۸۷

مقاله پژوهشی

تهیه فیلم کامپوزیت زیست تخریب‌پذیر کربوکسی متیل سلولز- صمغ عربی و ارزیابی خصوصیات فیزیکی، مکانیکی و حرارتی آن

امیر رضائی[۱]- مسعود رضائی*[۲]- مهدی آل بوفتیله[۳]

تاریخ دریافت: ۱۳۹۸/۱۲/۱۲
تاریخ پذیرش: ۱۳۹۹/۰۳/۱۷

چکیده

در این پژوهش اثر ترکیب دو پلیمر کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی به‌منظور بهبود خواص فیزیکی و مکانیکی فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر مورد مطالعه قرار گرفت. بدین منظور ابتدا فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی به‌صورت جداگانه تهیه و در ادامه این دو پلیمر به نسبت‌های مختلف (۷۵:۲۵، ۵۰:۵۰ و ۲۵:۷۵) با یکدیگر ترکیب شده و خصوصیات فیزیکی، مکانیکی و حرارتی آنها ارزیابی گردید. میزان نفوذپذیری به بخار آب در فیلم‌های ترکیبی دو پلیمر با افزایش سطح صمغ عربی به‌طور معنی‌داری کاهش یافت ($p<0.05$) و کمترین میزان عبور بخار آب در تیمار ۷۵:۲۵ (کربوکسی متیل سلولز: صمغ عربی) ۲/۲۵۶۷ (g pas^{-1} m^{-1} s^{-1}) مشاهده شد. میزان آب‌گریزی فیلم‌ها با اضافه کردن صمغ عربی به ماتریس فیلم کربوکسی متیل سلولز به‌طور معنی‌داری از ۴۱/۳۳ درجه به ۶۱/۱۰ درجه افزایش یافت ($p<0.05$). مقاومت کششی فیلم‌های تولید شده با افزایش سطح صمغ عربی از ۵۱/۱۰ مگاپاسکال به ۳/۱۶ مگاپاسکال کاهش یافت. میزان عبور نور از فیلم‌های تولید شده با افزایش نسبت صمغ عربی کاهش نشان داد ($p<0.05$). بیشترین و کمترین میزان دمای انتقال ذوب به‌ترتیب در تیمارهای کربوکسی متیل سلولز (۲۶۵/۲۹ درجه سانتی‌گراد) و صمغ عربی (۲۴۱/۹ درجه سانتی‌گراد) مشاهده شد. به‌طورکلی، از نتایج حاضر دریافت می‌شود که تهیه فیلم‌های ترکیبی از کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی باعث بهبود برخی از ویژگی‌های فیلم‌های تولید شده از قبیل خواص فیزیکی، حرارتی و میزان عبور نور گردید.

واژه‌های کلیدی: فیلم کامپوزیت، کربوکسی متیل سلولز، صمغ عربی، فیلم زیست تخریب‌پذیر.

مقدمه

یکی از اهداف بسته‌بندی، حفظ کیفیت مواد غذایی به بهترین شکل ممکن و با صرف کمترین میزان هزینه می‌باشد، به‌طوری که به‌ترتیب رضایت مصرف کننده و تولیدکننده را به همراه داشته باشد. بسیاری از مواد مورد استفاده در تهیه بسته‌بندی مواد غذایی، پلیمرهای حاصل از مشتقات نفتی می‌باشند. در سال‌های اخیر به دلیل مخاطرات زیست محیطی حاصل از این بسته بندی‌ها، تمایل به استفاده از پلیمرهای طبیعی و زیست تخریب‌پذیر در صنعت بسته‌بندی مواد غذایی افزایش یافته است (Wang *et al.*, 2010). فیلم‌ها و پوشش‌های خوراکی زیست تخریب پذیر که در سال‌های اخیر توجه خاصی را به خود جلب کرده‌اند، می توانند به‌عنوان راهکاری برای جلوگیری از مضرات بسته بندی‌های معمول مورد استفاده قرار گیرند (Emiroğlu *et al.*, 2010). این نوع پوشش‌ها سطح ماده غذایی را پوشانده و می‌توانند به‌عنوان مانعی در برابر عوامل مخرب از قبیل گاز اکسیژن، دی‌اکسیدکربن و رطوبت عمل کرده و در نهایت نگهداری محصول بسته‌بندی شده را افزایش دهند (Falguera *et al.*, 2011). پروتئین‌ها و پلی ساکاریدها از مهم‌ترین ترکیبات مورد استفاده در تهیه فیلم‌های خوراکی و زیست تخریب‌پذیر هستند. کازئین شیر، کلاژن، ژلاتین، سلولز، پکتین، دکسترین، نشاسته و نشاسته‌های اصلاح شده، کیتوزان، کاراژینان، آلژینات و صمغ‌ها نمونه‌هایی از این ترکیبات هستند (Mariniell *et al.*, 2003; Ojagh *et al.*, 2010). کربوکسی متیل سلولز از مشتقات سلولز بوده که به دلیل قیمت پایین، امکان تولید فیلم‌های شفاف، خاصیت بازدارندگی نسبت به اکسیژن و چربی‌ها قابلیت استفاده در تهیه فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر را داراست.

صمغ‌ها به‌طور گسترده در صنایع غذایی برای تهیه ژل و سوسپانسیون و همچنین به‌عنوان پایدارکننده مورد استفاده قرار می‌گیرند. صمغ‌ها ترکیبات پلی‌ساکاریدی و محلول در آبی هستند که از منابع مختلفی همچون صمغ‌های ترشحی، صمغ‌های جلبکی، دانه‌ای،

۱ و ۲- به‌ترتیب دانشجوی کارشناسی ارشد و استاد، گروه فرآوری محصولات شیلاتی، دانشکده منابع طبیعی و علوم دریایی، دانشگاه تربیت مدرس ، نور، ایران.
۳- پژوهشکده آبزی‌پروری آبهای داخلی، موسسه تحقیقات علوم شیلاتی کشور، سازمان تحقیقات، آموزش و ترویج کشاورزی، بندر انزلی، ایران.
(*-نویسنده مسئول: Email: a_rezaie@modares.ac.ir)
DOI: 10.22067/ifstrj.v17i2.85857

میکروبی و مشتقات نشاسته و سلولز تهیه می‌شوند. یکی از صمغ‌هایی که بیشتر مورد توجه است، صمغ عربی می‌باشد. صمغ عربی هتروپلی‌ساکاریدی پیچیده می‌باشد که از ترکیباتی با وزن مولکولی بالا تشکیل شده و از درخت *Acacia senegal* ترشح می‌شود. در صمغ عربی بر خلاف سایر صمغ‌ها میزان ویسکوزیته در غلظت‌های پایین، زیاد نمی‌باشد اما با افزایش غلظت، ویسکوزیته به سرعت افزایش می‌یابد (Phillips *et al.*, 2000). همچنین گزارش شده است که صمغ عربی قابلیت تشکیل فیلم زیستی مناسبی نیز دارا می‌باشد (Mishrs & Murmu, 2018). استفاده از فیلم‌های بیوپلیمری به دلیل مشکلات مرتبط با عملکرد آن‌ها و حساسیت ذاتی به آب، مقاومت و سختی نسبتا کم به ویژه در محیط‌های مرطوب با محدودیت مواجه شده است (Azeredo, 2009; Arora *et al.*, 2010). همچنین مطالعات پیشین نشان داده است که فیلم‌های تهیه شده از یک پلیمر به‌طور معمول نسبت به شرایط محیطی حساس بوده و خواص مکانیکی ضعیف‌تری را نشان می‌دهند. تاکنون راه‌های مختلفی برای غلبه بر این محدودیت‌ها مورد استفاده قرار گرفته‌اند. یکی از این راه‌ها، ترکیب پلیمرهای مختلف با یکدیگر و تشکیل فیلم‌های ترکیبی می‌باشد (Rhim *et al.*, 2006). در این زمینه پیشتر طبری و همکاران (۱۳۹۵) برخی خواص فیزیکی و مکانیکی فیلم‌های تهیه شده از کربوکسی متیل سلولز و کتیرا را مورد بررسی قرار دادند. همچنین مطالعاتی در رابطه با تهیه فیلم کامپوزیت کیتوزان- کتیرا توسط اجاق و همکاران (۱۳۹۶) بررسی گردید. نتایج تحقیقات عنوان شده بیان داشت که تهیه فیلم‌های ترکیبی می‌تواند منجر به بهبود ویژگی‌های فیلم‌های تهیه شده گردد. براساس مطالب گفته شده در رابطه با ضعف‌ها و مشکلات تهیه فیلم‌های تک پلیمری و امکان بهبود ویژگی‌های این فیلم‌ها با ترکیب بیوپلیمرها با یکدیگر و همچنین با توجه به اینکه تاکنون مطالعه‌ای در زمینه ترکیب صمغ عربی با کربوکسی متیل سلولز گزارش نشده است در پژوهش حاضر به‌منظور تهیه بهترین فیلم دارای ویژگی‌های فیزیکی و مکانیکی مناسب، ابتدا نسبت‌های مختلف دو پلیمر کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی با یکدیگر ترکیب شده و در ادامه فیلم‌های تهیه شده از نظر ویژگی‌های کیفی متعدد مورد ارزیابی قرار گرفته تا بهترین نسبت ترکیب پلیمرها ارائه گردد.

مواد و روش‌ها

مواد مورد آزمایش در این تحقیق شامل کربوکسی متیل سلولز می‌باشد که از شرکت Dycell تهیه گردید. همچنین صمغ عربی از بازار محلی و گلیسرول از شرکت مرک آلمان خریداری شد.

تهیه فیلم‌ها

محلول یک درصد (وزنی- حجمی) صمغ عربی و کربوکسی متیل سلولز به‌صورت جداگانه به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۴۵ درجه توسط همزن مغناطیسی تهیه شد. محلول‌های حاصل به‌منظور تولید فیلم کامپوزیت در پنج نسبت مختلف شامل ۱۰۰ درصد کربوکسی متیل سلولز (ک ۱۰۰-ص ۰)، ۷۵ درصد کربوکسی متیل سلولز (ک ۷۵- ص ۲۵)، ۵۰ درصد کربوکسی متیل سلولز (ک ۵۰- ص ۵۰)، ۲۵ درصد کربوکسی متیل سلولز (ک ۲۵- ص ۷۵) و ۱۰۰ درصد صمغ عربی (ک ۰- ص ۱۰۰) تهیه شدند. گلیسرول به‌منظور افزایش خاصیت انعطاف‌پذیری و نرم شدن فیلم‌ها به میزان ۰/۳ گرم به ازای هر گرم پلیمر به آن‌ها اضافه شد. محلول تهیه شده توسط دسیکاتور پمپ خلاء حباب‌زدایی شده و به پلیت‌های پلاستیکی (۸ سانتی‌متر) منتقل گردید. پلیت‌ها برای خشک شدن به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۴۵ درجه در آون قرار داده شدند. بعد از خشک شدن و جدا کردن از پلیت‌ها، فیلم‌ها به مدت ۴۸ ساعت در دیسکاتور حاوی محلول اشباع نیترات منیزیم جهت تعادل رطوبتی و دمایی قرار داده شدند (اجاق و همکاران، ۱۳۹۶؛ Ghaderi و همکاران، ۲۰۱۹).

بررسی خواص فیزیکی فیلم‌ها

آزمون پراش پرتو ایکس (XRD)

آزمون پراش پرتو ایکس فیلم‌های تهیه شده با استفاده از دستگاه X'Pert MPD ساخت کشور هلند با پرتویی با طول موج پرتو ۱/۷۸۹۰۱ آنگستروم و با تیوب کبالت در زاویه ۸۰-۵=θ۲ درجه، در دمای محیط و با سرعت یک درجه در دقیقه صورت پذیرفت (Ghaderi و همکاران، ۲۰۱۹).

آزمون طیف سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز (FTIR)

این آزمون با استفاده از دستگاه Shimadzu (۸۴۰۰s، ژاپن) مورد ارزیابی قرار گرفت. نمونه‌های مورد آزمایش پس از آماده‌سازی برش داده شده و تکه‌هایی با قطر ۲ سانتی‌متر بین دو صفحه KBr قرار گرفتند. طیف‌های FTIR در گستره cm^{-1} ۴۰۰-۴۰۰۰ و تفکیک‌پذیری cm^{-1} ۴ تعیین گردید (Jiang et al., 2019).

نفوذپذیری نسبت به بخار آب (WVP)

خاصیت نفوذپذیری نمونه‌ها نسبت به بخار آب طبق روش شماره E96 بررسی شد (ASTM, 2002). در این آزمایش از سلول‌های نفوذپذیری با ابعاد ۳ سانتی‌متر قطر داخلی و ۳/۵ سانتی‌متر ارتفاع داخلی که حاوی ۱۰ میلی‌لیتر آب مقطر بودند استفاده شد. فیلم‌ها بر سطح سلول‌های نفوذپذیری نصب گردید و در ادامه سل داخل دسیکاتور حاوی سیلیکاژل به مدت ۸ ساعت قرار داده شد. طی این زمان، وزن

سل‌ها توسط ترازوی دیجیتال ۰/۰۰۰۱ اندازه‌گیری شد. نرخ انتقال بخار آب با استفاده از معادله ۱ اندازه‌گیری شد.

(۱) (سطح سلول)/(شیب خط)= نرخ انتقال بخار آب

همچنین میزان نفوذپذیری به بخار آب از ضرب نمودن نرخ انتقال بخار آب در ضخامت فیلم‌ها و تقسیم آن در اختلاف فشار موجود در دو سمت فیلم به‌دست آمد و به‌صورت گرم $^{-1}$ پاسکال $^{-1}$ متر $^{-1}$ ثانیه ($g\ pas^{-1}\ m^{-1}\ s^{-1}$) گزارش شد.

زاویه تماس

زاویه تماس فیلم‌های تهیه شده به عنوان فاکتوری از میزان آب‌دوستی و آب‌گریزی مواد با استفاده از دستگاه Rycobel (سوئیس) مورد بررسی قرار گرفت. حدود ۵ میکرولیتر آب دوبار تقطیر و فاقد یون به وسیله میکروسرنگ بر سطح افقی فیلم در دمای ۵±۲۳ درجه سانتی‌گراد با ۳ تکرار قرار گرفت و در نهایت میزان زاویه تماس در طول مدت زمان یک دقیقه اندازه‌گیری شد (قادری و همکاران، ۲۰۱۹).

سنجش کدورت و عبور نور

جهت سنجش کدورت، نمونه‌های فیلم (۹×۴۰ میلی‌متر) به مدت ۲۴ ساعت در دسیکاتور حاوی سیلیکا ژل خشک شدند. در ادامه، جذب فیلم‌ها در طول موج ۶۰۰ نانومتر توسط دستگاه اسپکتروفوتومتر (Unic، چین) اندازه‌گیری و برای محاسبه میزان کدورت از معادله زیر استفاده شد (Liang *et al*., 2019).

(۲) (ضخامت نمونه)/(جذب نور)=کدورت

رنگ سطحی

بررسی رنگ سطحی نمونه‌ها توسط دستگاه رنگ‌سنج (BYK Gardner، آمریکا) انجام شد. در این آزمون از یک پلیت سفید به‌عنوان مرجع استفاده شد و فاکتورهای L^*، a^* و b^* که به‌ترتیب بیانگر میزان روشنایی، قرمز/ سبز و زرد/ آبی می‌باشند اندازه‌گیری شدند. به‌منظور محاسبه اختلاف رنگ نمونه‌ها و شاخص سفیدی از معادلات ۳ و ۴ استفاده گردید که داده‌های مرتبط با پلیت استاندارد (L، a و b) و همچنین داده‌های L^*، a^* و b^* مربوط به هر نمونه در معادلات قرار داده شد (Ojagh *et al.*, 2010; Jiang *et al*., 2019; Bolin & Huxsoll, 1991 و اجاق و همکاران، ۱۳۹۶).

(۳) (ΔE) اختلاف رنگ فیلم‌ها= $\sqrt{(\Delta L)^2 + (\Delta a)^2 + (\Delta b)^2}$

در اینجا $\Delta L = L^*-L,\ \Delta a= a^*-a,\ \Delta b= b^*-b$ است.

(۴) شاخص سفیدی= $100-\sqrt{(100-L^*)^2 + a^{*2} + b^{*2}}$ (Whiteness Index)

خصوصیات مکانیکی فیلم‌ها

ضخامت فیلم‌ها در پنج نقطه از هر تکرار توسط ریزسنج دیجیتالی ۰/۰۰۱ میلی‌متر (Mitutoyo، ژاپن) اندازه‌گیری شد. به‌منظور بررسی خاصیت مکانیکی نمونه‌ها ابتدا فیلم‌ها در ابعاد (۱۰×۶۰ میلی‌متر) برش داده شد و آزمون کشش طبق استاندارد D882-09 مصوب ASTM انجام شد. سرعت کشش ۵۰ میلی‌متر بر دقیقه و فاصله بین دو فک ۳ سانتی‌متر انتخاب شد. شاخص‌های مقاومت کششی (TS) (MPa) و درصد کرنش در نقطه شکست (EAB) (٪) (۱۰۰× طول اولیه/ تغییر طول اولیه) از روی منحنی‌های نیرو بر حسب تغییر شکل به‌دست آمدند (ASTM، ۲۰۰۲).

آزمون گرماسنجی افتراقی (DSC)

به‌منظور بررسی رفتار گرمایی فیلم‌ها از دستگاه DSC (MALVERN، ZEN3600، انگلستان) استفاده شد. حدود ۱۵ میلی‌گرم از هر نمونه از دمای ۳۰ تا ۳۶۰ درجه گرما داده شد که تغییرات دمایی ثابت و برابر ۱۰ درجه سانتی‌گراد در دقیقه بود.

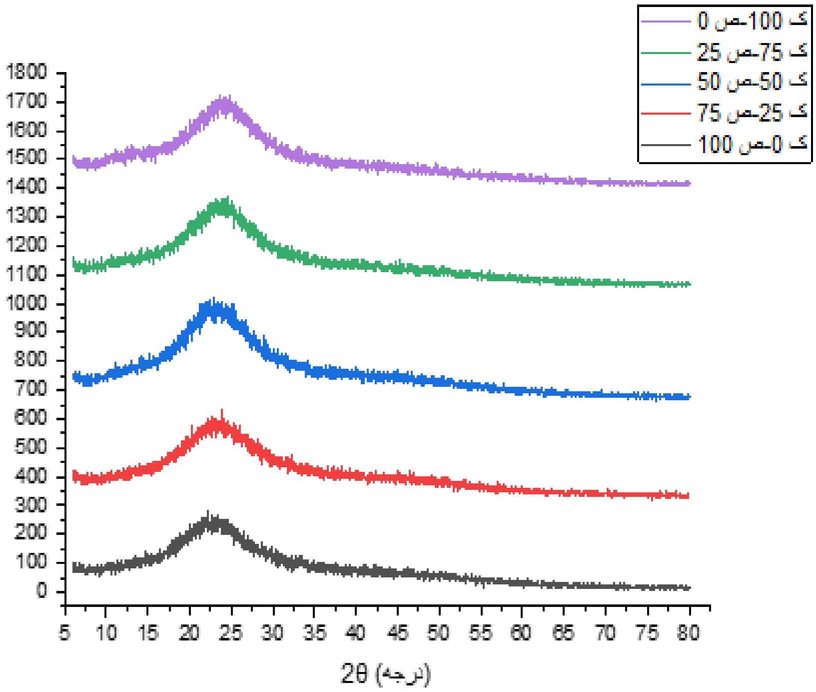
تجزیه و تحلیل آماری داده‌ها

جهت مقایسه فاکتورهای بیان شده و بررسی معنی‌داری اختلاف بین فیلم‌های تهیه شده، از نرم‌افزار SPSS نسخه ۲۰، آزمون آنالیز واریانس یک طرفه و مقایسه میانگین‌ها با استفاده از آزمون دانکن استفاده شد. سطح معنی‌داری برای تمامی فاکتورها $p<0/05$ در نظر گرفته شد.

نتایج و بحث

آزمون پراش پرتو ایکس (XRD)

آزمون XRD به‌منظور بررسی ساختار کریستالی فیلم‌های تهیه شده سنجش گردید. نتایج آزمون XRD فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز، صمغ عربی و فیلم‌های ترکیبی در شکل ۱ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود تمامی فیلم‌های تهیه شده دارای یک پیک می‌باشند. فیلم‌های تهیه شده از کربوکسی متیل سلولز و صمغ خالص به‌ترتیب دارای یک پیک نسبتا قوی در نواحی ۲۴/۰۹ −2θ و ۲۲/۹ −2θ بودند. این پیک در فیلم ترکیبی کربوکسی متیل سلولز ۷۵ درصد و صمغ عربی ۲۵ درصد، فیلم کربوکسی متیل سلولز ۵۰ درصد و صمغ عربی ۵۰ درصد و فیلم کربوکسی متیل سلولز ۲۵ درصد و صمغ عربی ۷۵ درصد به‌ترتیب در نواحی ۲۳/۶۹ −2θ، ۲۳/۳۲ −2θ و ۲۳/۱۱ −2θ مشاهده شد.



شکل ۱- الگوی پراش پرتو ایکس فیلم‌های تهیه شده

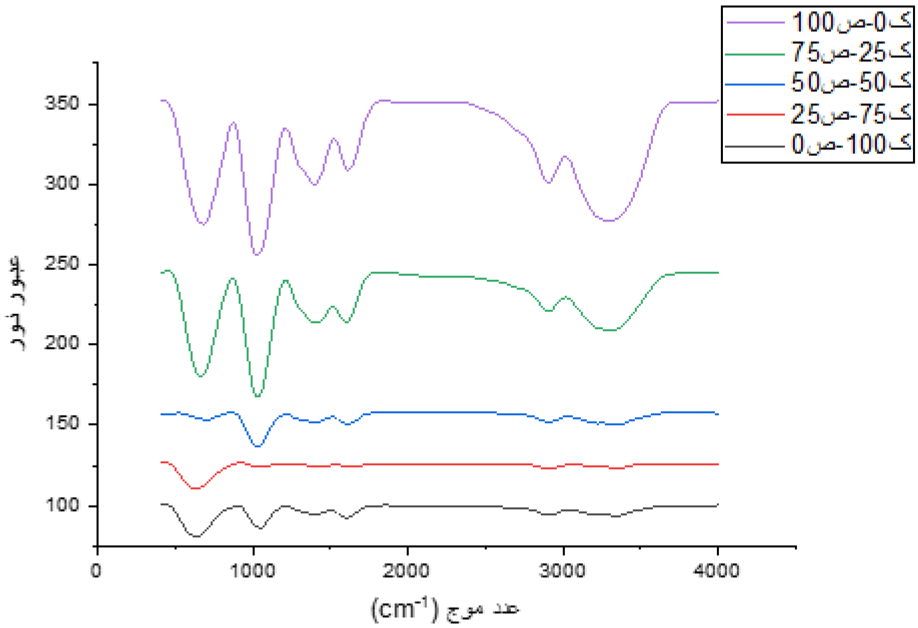
ک ۱۰۰-ص ۰= فیلم کربوکسی متیل سلولز خالص

ک ۷۵-ص ۲۵= فیلم ترکیبی با نسبت ۷۵ درصد کربوکسی متیل سلولز و ۲۵ درصد صمغ عربی

ک ۵۰-ص ۵۰= فیلم ترکیبی با نسبت ۵۰ درصد کربوکسی متیل سلولز و ۵۰ درصد صمغ عربی

ک ۲۵-ص ۷۵= فیلم ترکیبی با نسبت ۲۵ درصد کربوکسی متیل سلولز و ۷۵ درصد صمغ عربی

ک ۰- ص ۱۰۰= فیلم صمغ عربی خالص



شکل ۲- الگوی طیف مادون قرمز فیلم‌های تهیه شده

افزودن صمغ عربی به فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز باعث کاهش زاویه و پهن‌تر شدن پیک در فیلم‌های ترکیبی گردید. این پدیده می‌تواند ناشی از تشکیل پیوندهای جدید بین دو پلیمر و ایجاد ترکیب جدید باشد (Yoksan *et al.*, 2010). به‌طور کلی کاهش شدت و زاویه پیک‌ها نشان‌دهنده کاهش ساختار کریستالی در فیلم‌های تهیه شده می‌باشد (Jingou *et al.*, 2011). بر این اساس ساختار کریستالی فیلم‌های ترکیبی و صمغ عربی کمتر از ساختار کریستالی فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز می‌باشد.

آزمون طیف‌سنجی مادون قرمز با تبدیل فوریه (FTIR)

طیف‌سنجی مادون قرمز به‌منظور بررسی وضعیت پیوندها و ریزساختار مواد یا به عبارتی ارزیابی پیوندهای هیدروژنی و سایر واکنش‌ها در قابلیت ترکیب پلیمرها انجام می‌شود (Zhang *et al.*, 2002). نتایج آزمون طیف‌سنجی مادون قرمز با تبدیل فوریه فیلم‌های مختلف تولید شده در شکل ۲ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود شدت پیک‌ها در الگوهای FTIR فیلم‌های مختلف متفاوت بوده و با افزایش میزان کربوکسی متیل سلولز در تیمارهای ترکیبی شدت پیک‌ها کاهش یافت. پیک‌های تشکیل شده در تیمار صرفا دارای صمغ عربی در فرکانس‌های بین cm^{-1} ۳۰۰۰ و ۳۵۰۰، cm^{-1}۳۰۰۰–۲۸۰۰ قابل مشاهده است که به‌ترتیب مرتبط با باندهای کششی متقارن و نامتقارن N-H در گروه آمین و باندهای کششی هیدروکسیل‌های آزاد (اجاق و همکاران، ۱۳۹۶)، باند کششی گروه CH (Dudhani *et al.*, 2010) می‌باشد. همچنین پیوندهای C=O کششی، گروه NH و ارتعاش کششی متقارن CH به‌ترتیب در فرکانس‌های cm^{-1} ۱۰۲۶، cm^{-1} ۱۵۹۷ و cm^{-1} ۱۳۲۴ مشاهده شد (قادری و همکاران، ۲۰۱۹). همه این پیک‌ها در فیلم‌های ترکیبی و فیلم تهیه شده از کربوکسی متیل سلولز در طول موج‌های مشابه ظاهر شدند اما شدت آن‌ها کاهش یافت. همچنین در محدوده cm^{-1} ۸۴۷ تا ۶۷۴ پیک‌هایی مشاهده شد که مرتبط با تفسیر وضعیت آنومری در فرم پیرانوزی قندها می‌باشد (رجایی و همکاران، ۱۳۹۸). کاهش شدت پیک‌ها در فیلم‌های ترکیبی می‌تواند به دلیل شکل‌گیری یک ساختار ویژه در نتیجه واکنش بین گروه‌های عاملی کربوکسی متیل سلولز و گروه‌های عاملی صمغ عربی باشد.

خواص فیزیکی فیلم‌ها (نفوذپذیری نسبت به بخار آب و زاویه تماس)

سنجش میزان نفوذپذیری به بخار آب در بسته‌بندی مواد غذایی به دلیل مشارکت این عامل در واکنش‌های عامل فساد، از مهمترین پارامترهای مورد مطالعه در زمینه تهیه فیلم‌های خوراکی می‌باشد. در مطالعه حاضر خاصیت نفوذپذیری نسبت به بخار آب به‌عنوان یکی از ویژگی‌های فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر توسط بررسی نرخ انتقال بخار آب نسبت به زمان مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج نشان داد تفاوت معنی‌داری بین تیمارهای مختلف از نظر میزان نفوذپذیری نسبت به بخار آب وجود دارد ($p<0/05$).

جدول ۱- میزان نفوذپذیری به بخار آب و زاویه تماس فیلم‌های تهیه شده

فیلم	زاویه تماس (°)	نفوذپذیری ($g\ pas^{-1}\ m^{-1}\ s^{-1}$)
ک۱۰۰-ص۰	۴۱/۳۳ ± ۰/۴۱^{b}	۴/۱۹۶۷ ± ۰/۲۵^{a}
ک۷۵-ص۲۵	۶۲/۱۶ ± ۸/۰۷^{a}	۳/۳۰۶۷ ± ۰/۲۸^{b}
ک۵۰-ص۵۰	۶۶/۸۰ ± ۰/۷۵^{a}	۳/۰۰۰۰ ± ۰/۰۹^{b}
ک۲۵-ص۷۵	۶۴/۰۳ ± ۳/۳۴^{a}	۲/۲۵۶۷ ± ۰/۱۳^{c}
ک۰-ص۱۰۰	۶۱/۱۰ ± ۹/۱۰^{a}	۳/۲۲۰۰ ± ۰/۶۳^{b}

حروف انگلیسی کوچک متفاوت در هر ستون بیانگر وجود تفاوت معنی‌دار بین تیمارهای مختلف فیلم کامپوزیت می‌باشد ($p<0/05$).

ک ۱۰۰–ص ۰= فیلم کربوکسی متیل سلولز خالص

ک ۷۵–ص ۲۵= فیلم ترکیبی با نسبت ۷۵ درصد کربوکسی متیل سلولز و ۲۵ درصد صمغ عربی

ک ۵۰–ص ۵۰= فیلم ترکیبی با نسبت ۵۰ درصد کربوکسی متیل سلولز و ۵۰ درصد صمغ عربی

ک ۲۵–ص ۷۵= فیلم ترکیبی با نسبت ۲۵ درصد کربوکسی متیل سلولز و ۷۵ درصد صمغ عربی

ک ۰– ص ۱۰۰= فیلم صمغ عربی خالص

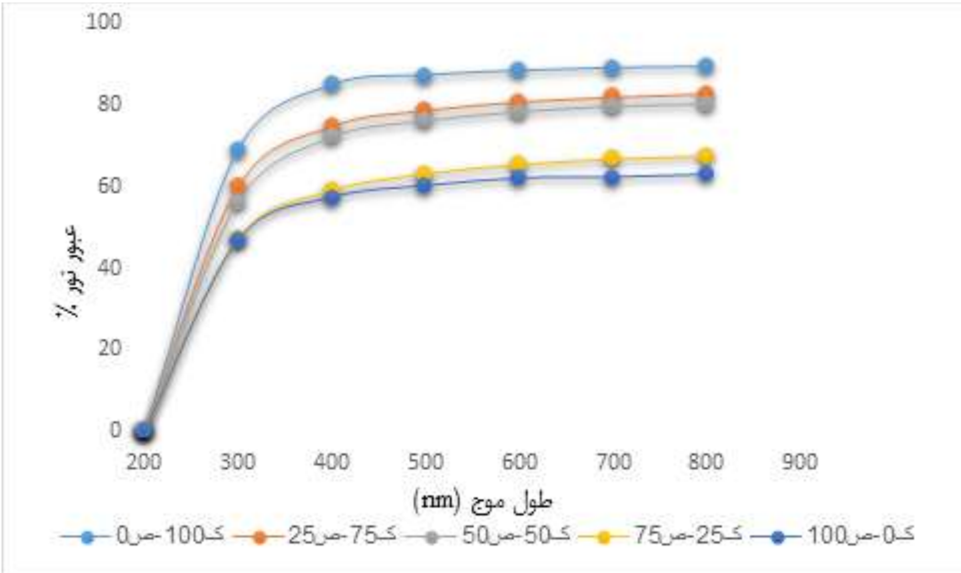
بدین صورت که با افزایش درصد صمغ عربی میزان نفوذپذیری نسبت به بخار آب کاهش یافت (جدول ۱). علت این کاهش می‌تواند به دلیل وجود خاصیت آب‌گریزی بیشتر (آبدوستی کمتر) فیلم صمغ عربی نسبت به کربوکسی متیل سلولز بوده که در نهایت باعث کاهش میزان نفوذپذیری به بخار آب شده باشد (طبری و همکاران، ۱۳۹۳). نتایج آزمون زاویه تماس که در ادامه به آن پرداخته خواهد شد نیز بیانگر این می‌باشد که فیلم‌های صمغ عربی به نسبت فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز خاصیت آبگریزی بیشتری دارا هستند (جدول ۱). پیشتر

طبری و همکاران (۱۳۹۳) نشان دادند که افزودن صمغ کتیرا به فیلم-های کربوکسی متیل سلولز، باعث کاهش میزان نفوذپذیری فیلم‌های ترکیبی شد. اجاق و همکاران (۱۳۹۶) نیز رفتار مشابهی برای فیلم‌های ترکیبی کیتوزان–کتیرا گزارش کردند

نتایج حاصل از آزمون زاویه تماس که در جدول ۱ آورده شده است نشان داد که زاویه تماس فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی به ترتیب ۴۱/۳۳ و ۶۱/۱۰ می‌باشد. با افزودن صمغ عربی به فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز زاویه تماس در فیلم‌های کامپوزیت افزایش پیدا کرد. بیشترین مقدار زاویه تماس در فیلم ترکیبی ۵۰:۵۰ مشاهده گردید (۶۶/۸۰). زاویه تماس آب به‌عنوان شاخص نشان‌دهنده ویژگی‌های آبدوستی و آبگریزی مواد می‌باشد (اجاق و همکاران، ۲۰۱۰). به‌طور کلی بالاتر بودن زاویه تماس نشان‌دهنده آبگریزتر بودن ماده مورد مطالعه می‌باشد و بالعکس. بر این اساس افزودن پلیمرهای آبدوست باعث کاهش میزان زاویه تماس خواهد شد. سطوح با خاصیت آبدوستی بیشتر به علت واکنش با مولکول‌های آب منجر به پهن شدن قطره بر روی سطح می‌شوند. به این ترتیب طبق جدول ۱ افزایش میزان غلظت صمغ عربی به فیلم کربوکسی متیل سلولز باعث افزایش میزان زاویه تماس در فیلم‌های ترکیبی گردید. در واقع صمغ عربی با افزایش میزان آبگریزی قطرات آب را وادار به کاهش ارتباط با سطح فیلم‌ها می‌کنند و در نهایت زاویه تماس قطره آب با سطح فیلم افزایش می‌یابد

کدورت و عبور نور

میزان کدورت فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز خالص، صمغ عربی خالص و فیلم‌های کامپوزیت در جدول شماره ۲ نشان داده‌اند. همانطور که مشاهده می‌شود با افزایش نسبت صمغ عربی میزان کدورت در فیلم کامپوزیت به‌طور معنی‌داری افزایش یافت ($p<0/05$) و بیشترین میزان کدورت در تیمار ۱۰۰ درصد صمغ عربی مشاهده شد. کدورت در فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر با میزان سطح شفافیت رابطه عکس دارند. به‌طوری که با افزایش میزان کدورت شفافیت فیلم‌های تولیدی کاهش می‌یابد (Pereda *et al*., 2011). در بررسی این آزمون می‌توان عنوان کرد که وجود رنگ متمایل به زرد در ساختار صمغ عربی علت افزایش کدورت در فیلم‌های کامپوزیت باشد.



شکل ۳- میزان عبور نور از فیلم‌های تهیه شده

میزان عبور نور از فیلم‌های تولیدی در طول موج‌های ۲۰۰ تا ۸۰۰ نانومتر در شکل شماره ۳ نشان داده شده است. بر اساس نتایج به‌دست آمده، افزایش نسبت صمغ عربی در بستر فیلم‌های کامپوزیتی منجر به کاهش عبور نور گردید. به‌طوریکه کمترین میزان عبور نور در فیلم‌های صمغ عربی خالص مشاهده شد. علت این امر می‌تواند به دلیل حضور صمغ عربی در ماتریس فیلم و افزایش ضخامت فیلم‌ها باشد (جدول ۳). این کاهش میزان عبور نور می‌تواند نشان‌دهنده قابلیت فیلم‌های تولیدی در جذب پرتوهای UV باشد (قادری و همکاران، ۲۰۱۹). این پرتوها بیشترین اثر مخرب نور را در مواد غذایی دارا هستند و میزان اکسیداسیون را در ترکیبات غذایی شدت می‌دهند. به این ترتیب فیلم‌های تهیه شده می‌توانند در صنعت بسته‌بندی مواد غذایی مطلوب واقع شده و پدیده اکسیداسیون ناشی از پرتوهای UV را کاهش دهند (Guo *et al*., 2014; Bonilla *et al*., 2014).

رنگ سطحی فیلم‌ها

در صنعت بسته‌بندی مواد غذایی، رنگ فیلم‌های تولید شده از عوامل موثر بر ظاهر عمومی محصول، پذیرش مصرف کننده و همچنین

کاربرد آن‌ها می‌باشد (قنبرزاده و همکاران، ۲۰۱۰). شاخص‌های رنگ سطحی فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز، صمغ عربی و کامپوزیت کربوکسی متیل سلولز- صمغ عربی در جدول شماره ۲ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود با افزایش میزان صمغ عربی در بستر فیلم‌ها پارامتر L^* کاهش یافت به‌طوری که این میزان در فیلم صمغ عربی ۸۰/۷۷ و در فیلم تهیه شده از کربوکسی متیل سلولز ۸۱/۹۴ اندازه‌گیری شد. این نتایج با نتایج افزایش کدورت در نتیجه افزایش نسبت صمغ عربی مطابقت دارد. پارامتر b^* با فزایش سطح صمغ عربی در بستر فیلم افزایش یافت و بیشترین میزان آن در فیلم تهیه شده از صمغ عربی (۳/۱۷) مشاهده شد. بر این اساس فیلم‌های صمغ عربی و ترکیبی به نسبت فیلم کربوکسی متیل سلولز زردتر شده‌اند. دلیل این امر را می‌توان به ماهیت و رنگ طبیعی صمغ عربی و همچنین وجود ترکیبات فنولی که منجر به جذب نور در طول موج پایین می‌شوند، نسبت داد (Shojaee-Aliabadi *et al*., 2014). این نتایج با مشاهدات ظاهری فیلم‌ها مطابقت دارد.

به‌منظور بررسی دقیق‌تر تغییرات رنگی ایجاد شده در فیلم‌های مختلف تهیه شده، پارامترهای اختلاف رنگی و شاخص سفیدی مورد ارزیابی قرار گرفتند. مطابق با جدول ۲، میزان اختلاف رنگی کل (ΔE) فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز خالص و صمغ عربی به‌ترتیب ۱۲/۸۲ و ۱۴/۲۵ می‌باشد. بالاتر بودن میزان اختلاف رنگ در فیلم‌های صمغ عربی می‌تواند ناشی از کدورت بالاتر این فیلم‌ها نسبت به کدورت فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز باشد. از این رو اختلاف رنگ نسبت به پلیت استاندارد در فیلم‌های صمغ عربی در مقایسه با فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز بیشتر خواهد بود. در بین فیلم‌های ترکیبی نیز اختلاف رنگ فیلم‌ها با افزایش نسبت صمغ عربی افزایش نشان داد. میزان شاخص سفیدی فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز خالص و صمغ عربی به‌ترتیب ۸۱/۸۵ و ۸۰/۵۰ می‌باشد. در بین فیلم‌های ترکیبی نیز شاخص سفیدی فیلم‌ها با افزایش نسبت صمغ عربی کاهش نشان داد. پیشتر اجاق و همکاران (۱۳۹۶) گزارش کردند که افزودن کتیرا به فیلم‌های کیتوزان باعث کاهش اختلاف رنگ و افزایش شاخص سفیدی در فیلم‌های ترکیبی گردید. این تفاوت می‌تواند ناشی از متفاوت بودن طبیعت صمغ استفاده شده باشد. در این رابطه صمغ کتیرا دارای رنگ روشن و سفیدتری نسبت به پلیمر کیتوزان دارا بوده این در حالی است که صمغ عربی دارای رنگ کدرتری نسبت به کربوکسی متیل سلولز دارا می‌باشد.

جدول ۲- شاخص‌های رنگ سطحی و میزان کدورت فیلم

فیلم	L^*	a^*	b^*	اختلاف رنگ	شاخص سفیدی	کدورت
ک۱۰۰-ص۰	۸۱/۹۴± ۱/۷۱[ab]	۰/۷۴± ۰/۰۵[a]	۱/۵۱± ۰/۲۶[b]	۱۲/۸۲± ۱/۷۷[ab]	۸۱/۸۵± ۱/۷۴[b]	۰/۶۱۰۰± ۰/۵۲[c]
ک۷۵-ص۲۵	۸۳/۷۱± ۰/۷۲[a]	۰/۰۲± ۰/۲۵[b]	۱/۳۹± ۰/۱۴[b]	۱۰/۹۹± ۰/۷۴[b]	۸۳/۶۴± ۰/۷۲[a]	۱/۰۷۰۰± ۰/۰۴[b]
ک۵۰-ص۵۰	۸۳/۳۸± ۰/۳۸[a]	۰/۰۶± /۰۴[b]	۲/۱۱± ۰/۵۱[b]	۱۱/۳۸± ۰/۴۳[b]	۸۳/۲۴± ۰/۴۳[a]	۱/۱۹۳۳± ۰/۱۲[ab]
ک۲۵-ص۷۵	۸۳/۲۳± ۰/۵۶[a]	۰/۰۳± ۰/۰۳[b]	۲/۰۴± ۰/۴۱[b]	۱۱/۵۲± ۰/۶۰[b]	۸۳/۰۹± ۰/۶۰[a]	۱/۴۴۰۰± ۰/۰۷[a]
ک۰-ص۱۰۰	۸۰/۷۷± ۰/۸۸[b]	۰/۱۶± ۰/۰۹[b]	۳/۱۷± ۰/۵۶[a]	۱۴/۲۵± ۱/۵[a]	۸۰/۵۰± ۰/۹۶[ab]	۱/۴۸۰۰± ۰/۳۲[a]

حروف انگلیسی کوچک متفاوت در هر ستون بیانگر وجود تفاوت معنی‌دار بین تیمارهای مختلف فیلم کامپوزیت می‌باشد ($p<0/05$).

خصوصیات مکانیکی فیلم‌ها

مواد بسته‌بندی شده تحت تاثیر عوامل و تنش‌های محیطی به‌ویژه در هنگام حمل و نقل قرار دارند که این امر اهمیت افزایش میزان مقاومت کششی در فیلم‌های بسته‌بندی را نشان می‌دهد (Rivero *et al*., 2010). نتایج حاصل از آزمون درصد افزایش طول و مقاومت در برابر کشش فیلم‌های تهیه شده در جدول ۳ نشان داده شده است. بین فیلم‌های تهیه شده تفاوت معنی‌داری از نظر مقاومت کششی و درصد افزایش طول در لحظه پاره شدن مشاهده شد ($p<0/05$). مقاومت کششی فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز خالص و صمغ عربی به‌ترتیب ۵۱/۱۰ و ۳/۱۶ مگاپاسکال می‌باشد. همانطور که مشاهده می‌شود مقاومت کششی فیلم‌های کامپوزیتی نسبت به فیلم کربوکسی متیل سلولز خالص با افزایش نسبت صمغ عربی به‌طور معنی‌داری کاهش یافت ($p<0/05$). پیشتر اجاق و همکاران (۱۳۹۶) نشان دادند که مقاومت کششی فیلم‌های کیتوزان با افزایش کتیرا کاهش یافت. درصد افزایش طول در لحظه پاره شدن فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز خالص و صمغ عربی به‌ترتیب ۸/۴۰ و ۲۹/۳۸ می‌باشد. کمترین میزان درصد افزایش طول در لحظه پاره شدن در تیمار ترکیبی ۵۰:۵۰ مشاهده گردید (۶/۰۸ درصد). نتایج حاصل از این تحقیق با نتایج مطالعات طبری و همکاران (۱۳۹۳) در ارتباط با ارزیابی خواص مکانیکی فیلم تهیه شده از کربوکسی متیل سلولز و کتیرا مطابقت داشت. همچنین مطالعات صورت گرفته توسط قنبرزاده و همکاران (۲۰۱۱) در رابطه با بهبود خواص فیزیکی و مکانیکی فیلم‌های تشکیل شده از نشاسته ذرت توسط CMC و اسید سیتریک با نتایج حاصل از تحقیق حاضر همپوشانی داشت.

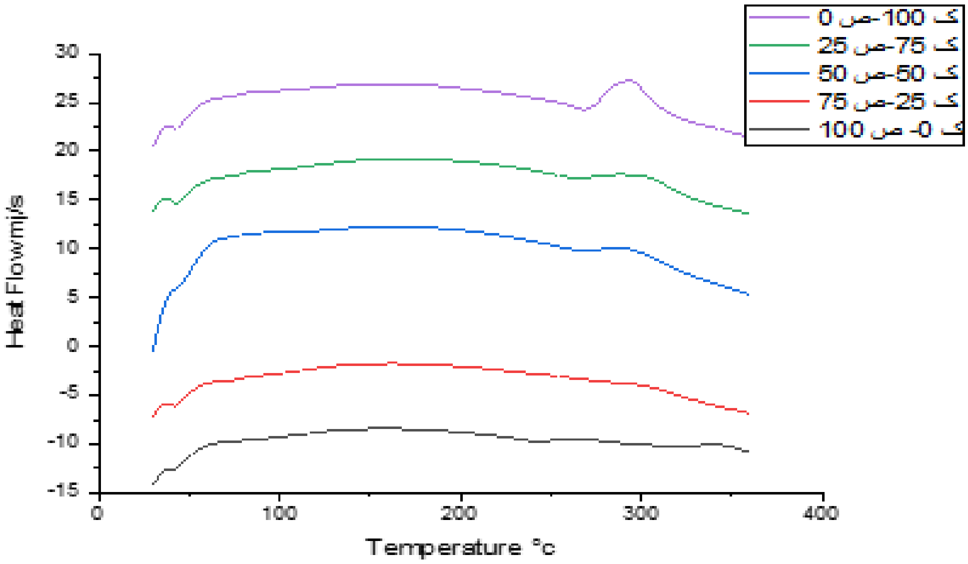
جدول ۳- خواص مکانیکی فیلم‌های تولیدی

فیلم	ضخامت (mm)	مقاومت کششی (MPa)	درصد افزایش طول (٪)
ک۱۰۰-ص۰	۰/۰۶± ۰/۰۰۲[e]	۵۱/۱۰ ±۱/۸۶[a]	۸/۴۰± ۲/۴۱[c]
ک۷۵-ص۲۵	۰/۰۷± ۰/۰۰۳[d]	۲۱/۶۳ ± ۱/۷۳[b]	۸/۱۶± ۱/۵۵[c]
ک۵۰-ص۵۰	۰/۰۸±۰/۰۰۲[c]	۱۹/۰۰± ۰/۶۲[c]	۶/۰۸± ۰/۷۲[d]
ک۲۵-ص۷۵	۰/۰۹± ۰/۰۰۴[b]	۸/۷۵± ۱/۰۰[d]	۱۸/۶۲± ۱/۴۳[b]
ک۰-ص۱۰۰	۰/۱۳± ۰/۰۰۲[a]	۳/۱۶± ۰/۶۶[e]	۲۹/۳۸± ۴/۹۳[a]

حروف انگلیسی کوچک متفاوت در هر ستون بیانگر وجود تفاوت معنی‌دار بین تیمارهای مختلف فیلم کامپوزیت می‌باشد ($p<0/05$).

آزمون گرماسنجی افتراقی (DSC)

امتزاج‌پذیری پلیمرها از عوامل مهم در بهبود ترکیبات نوین حاصل از ترکیب پلیمرها می‌باشد و بر خواص نهایی آن‌ها تاثیر می‌گذارد (Kanimozhi *et al.*, 2016). آزمون گرماسنجی افتراقی به‌منظور بررسی خواص حرارتی، شناخت بیشتر ساختار و تعامل بین پلیمرهای فیلم‌های تهیه شده بر پایه کربوکسی متیل سلولز و صمغ انجام شد و نتایج حاصل از آن در شکل شماره ۴ نشان داده شده است. دمای ذوب و دمای انتقال شیشه‌ای با بلورینگی نمونه فیلم‌ها در ارتباط است به‌طوری که در دمای انتقال شیشه‌ای پایین، فیلم‌ها سخت و شکننده هستند اما در دمای انتقال شیشه‌ای بالا فیلم‌ها از انعطاف‌پذیری بیشتری برخوردار هستند (Peesan *et al.*, 2005; Ghasemlou *et al.*, 2011). دمای ذوب اندوترمیک وابسته به حرکت مولکولی زنجیره‌های پلیمر و تخریب ساختار مولکولی منظم یا تجمع یافته می‌باشد که بر خواص مواد و کاربرد آن‌ها تاثیرگذار است (Tongnuachan *et al.*, 2016). دمای انتقال شیشه‌ای نمونه فیلم‌های تهیه شده از کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی به‌ترتیب ۴۱/۰۷ درجه سانتی‌گراد و ۴۳/۵۱ درجه سانتی‌گراد بود. همچنین دمای انتقال شیشه‌ای سایر فیلم‌های ترکیبی بالاتر از دمای اتاق بوده که به رطوبت پایین فیلم‌ها مربوط می‌باشد. این مرحله از تحقیق با یافته‌های Tongnuachan و همکاران (۲۰۱۶) همپوشانی دارد. بیشترین میزان دمای انتقال ذوب در تیمار صرفا دارای کربوکسی متیل سلولز مشاهده شد (۲۶۵/۲۹ درجه سانتی‌گراد) و تیمار تهیه شده از صمغ عربی کمترین دمای انتقال ذوب (۲۴۱/۹ درجه سانتی‌گراد) را نشان داد. ترکیب این دو پلیمر و تهیه فیلم‌های ترکیبی از آن‌ها منجر به بهبود مقاومت حرارتی فیلم صمغ عربی گردید به‌طوری که در تیمار حاوی ۵۰ درصد از هر پلیمر (ک ۵۰- ص ۵۰) دمای انتقال ذوب ۲۶۵/۱۵ درجه سانتی‌گراد اندازه‌گیری شد. افزایش میزان مقاومت دمایی می‌تواند به افزایش گروه‌های هیدروکسیل و پیوندهای هیدروژنی نسبت داده شود. پیشتر Ghanbarzadeh و Almasi (۲۰۱۱) نشان دادند که افزودن اسید اولئیک باعث کاهش مقاومت حرارتی فیلم‌های کربوکسی متیل سلولز گردید.



شکل ٤- الگوی DSC فیلم‌های تهیه شده

نتیجه‌گیری

تحقیق حاضر نشان داد که تهیه فیلم‌های کامپوزیت از پلیمرهای کربوکسی متیل سلولز و صمغ عربی در نسبت‌های مختلف منجر به بهبود برخی خواص فیزیکی فیلم‌های تهیه شده گردید. ترکیب این دو پلیمر باعث کاهش میزان نفوذپذیری به بخار آب، میزان عبور نور و ویژگی‌های مکانیکی و همچنین باعث افزایش زاویه تماس فیلم‌های تهیه شده گردید. بر اساس نتایج تحقیق حاضر می‌توان بیان نمود که ویژگی‌های فیزیکی، مکانیکی و حرارتی فیلم‌های ترکیبی تهیه شده وابسته به نوع ترکیب بکار رفته و همچنین سازگاری آنها با یکدیگر دارد.

منابع

Arora, A., & Padua, G. W. Nanocomposites in food packaging. *Journal of Food science*, 2010; 75(1), R43-R49.

Azeredo, H. Nanocomposites for food packaging applications. *Food Research International*, 2009; 42 (9), 1240-1253.

ASTM (2002). Standard Test Method for Tensile Properties of Thin Plastic Sheeting. Annual Book of ASTM Standards. Designation D882-02. Philadelphia: American Society for Testing Materials.

Bosquez-Molina, E., Tomás, S.A., Rodríguez-Huezo, M.E. Influence of CaCl on the water vapor permeability and the surface morphology of mesquite gum based edible films. *Lebensmittel-Wissenschaft & Technologi - Food Sci. Techno*. 2010; 43, 1419-1425.

Bolin, H.R., & Huxsoll, C.C. Control of Minimally Processed carrot (*Daucuscarota*) Surface Discoliration Caused by Abrasion Peeling. *Journal of food science*. 1991; 56(2): 416-422.

Bonilla, J., Fortunati, E. L. E. N. A., Atarés, L., Chiralt, A., & Kenny, J. M. Physical, structural and antimicrobial properties of poly vinyl alcohol-chitosan biodegradable films. *Food Hydrocolloids*: 2014; 35, 463–470.

Chen, C.H., Lai, L.S. Mechanical and water vapor barrier properties of tapioca starch/decolorized hsian-tsao leaf gum films in the presence of plasticizer. *Food Hydrocolloids*. 2008; 22, 1584-1595.

Dudhani, A. R., & Kosaraju, S. L. Bioadhesive chitosan nanoparticles: Preparation and characterization. *Carbohydrate polymers*, 2010; 81(2), 243-251.

Emiroğlu, Z. K., Yemis, G. P., Coskun, B. K., Candoğan, K. Antimicrobial activity of soy edible films incorporated with thyme and oregano essential oils on fresh ground beef patties. *Meat Science*, 2010; 86(2), 283-288.

Falguera, V., Quintero, J.P., Jimenez, A., Munoz, J. A. & Ibarz, A. Edible films and coating: Structures, active functions and trends in their use. *Trends in Food Science & amp: Technology*, 2011; 22 (6), 292-303.

Ghaderi, J., Hosseini, S. F., Keyvani, N., & Gómez-Guillén, M. C. Polymer blending effects on the physicochemical and structural features of the chitosan/poly (vinyl alcohol)/fish gelatin ternary biodegradable films. *Food Hydrocolloids*, 2019; 95, 122-132.

Ghanbarzadeh, B., Almasi, H., & Entezami, A. A. Physical properties of edible modified starch/carboxymethyl cellulose films. *Innovative food science & emerging technologies*, 2010; 11(4), 697-702.

Ghanbarzadeh, B., Almasi, H., Entezami, A., Improving the barrier and mechanical properties of corn starch-based edible films: Effect of citric acid and carboxymethyl cellulose. *Industrial Crops and Products*, 2011; 33, 229-235.

Ghanbarzadeh, B., & Almasi, H. Physical properties of edible emulsified films based on carboxymethyl cellulose and oleic acid. *International Journal of Biological Macromolecules:* 2011; 48, 44-49.

Ghasemlou, M., Khodaiyan, F., & Oromiehie, A. pHysical, mechanical, barrier, and thermal properties of polyol-plasticized biodegradable edible film made from kefiran. Carbohydrate Polymers: 2011; 84(1), 477-483.

Guo, J., Ge, L., Li, X., Mu, C., & Li, D. Periodate oxidation of xanthan gum and its crosslinking effects on gelatin-based edible films. *Food Hydrocolloids*: 2014; 39, 243–250.

Jingou, J., Shilei, H., Weiqi, L., Danjun, W., Tengfei, W., & Yi, X. Preparation, characterization of hydrophilic and hydrophobic drug in combine loaded chitosan/cyclodextrin nanoparticles and in vitro release study. Colloids and Surfaces B: *Biointerfaces*, 2011; 83(1), 103-107.

Jouki, M., Yazdi, F.T., Mortazavi, S.A., & Koocheki, A. Qunice seed mucilage films incorporated with oregani essential oil. pHysical, thermal, barrier, antioxidant and antibacterial properties. *Food Hydrocolloids*: 2014; 36, pp. 9-19.

Jiang, G., Hou, X., Zeng, X., Zhang, C., Wu, H., Shen, G., Li, S., Luo, Q., Li, M., Liu, X., Chen, A., Wang, Z & Zhang, Z. Preparation and characterization of indicator films from carboxymethyl-cellulose/starch and purple sweet potato (Ipomoea batatas (L.) Lam) anthocyanins for monitoring fish freshness. *International Journal of Biological Macromolecules*: 2019; 143, 359-372.

Kanimozhi, K., Basha, S,K. & Kumari, V, S. Processing and characterization of chitosan/PVA and methylcellulose porous scaffolds for tissue engineering. *Materials Science and Engineering*. 2016; C, 61, pp. 484-491.

Liang, T., Sun, G., Cao, L., Li, J., & Wang, L. A pH and NH3 sensing intelligent film based on Artemisia sphaerocephala Krasch. gum and red cabbage anthocyanins anchored by carboxymethyl cellulose sodium added as a host complex. *Food hydrocolloids*, 2019; 87, 858-868.

Mariniello, L., Di Pierro, P., Esposito, C., Sorrentino, A., Masi, P., & Porta, R. Preparation and mechanical properties of edible pectin–soy flour films obtained in the absence or presence of transglutaminase. *Journal of biotechnology*, 2003; 102(2), 191-198.

Martucci, J.F., Ruseckaite, R.A. Biodegradation behavior of three-layer sheets based on gelatin and poly (lactic acid) buried under indoor soil condition. *Polymer Degradation and Stability*, 2015; 116, 36-44.

Murmu, S.B., Mishra, H.N. The effect of edible coating based on Arabic gum, sodium caseinate and essential oil of cinnamon and lemon grass on guava. *Food Chemistry*, 2018; 245, 820-828.

Ojagh, S.M., Rezaei, M., Razavi, S.H., Hosseini, S.M.H. Development and evaluation of a novel biodegradable film made from chitosan and cinnamon essential oil with low affinity toward water. *Food Chemistry*, 2010; 122, 161–166.

Ojagh, S.M., Shariatmadari, F., Adeli, A., Kordjozi, M., & Abdolahi, M. Development composite films based chitosan-Katira and evaluation physical and mechanical properties. *Innovative Food Technologies.* 2017; 4, 151-161. (In Persian).

Pereda, M., Marcovich, N.E., Aranguren, M.I. Characterization of chitosan/caseinate films. *J Appl Polym Sci.*, 2011;107, 1080-1090.

Pereira, J. R., V, A., de Arruda, I.N.Q., & Stefani, R. Active chitosan/PVA films with anthocyanins from Brassica oleraceae (Red Cabbage) as time-temperature indicators for applications in intelligent food packaging. *Food Hydrocolloids*: 2015; 43, pp. 180-188.

Phillips, G. O., & Williams, P. A. (Eds.). Handbook of hydrocolloids (pp. 53-64). Boca Raton, 2000; FL: CRC press.

Peesan, M., SupapHol, P & Rujiravaint, R. Preparation and characterization of hexanoyl chitosan/polylactide blend films. *Carbohydrate Polymers*. 2005; 60(3), pp. 343-350.

Qi, L., Xu, Z., Jiang, X., Hu, C & Zou, X. Preparation and antibacterial activity of chitosan nanoparticles. *Carbohydrate research*: 2004; 339, 2693-2700.

Rivero, S., Garcia, M.A., Pinotti, A., Correlations between structural, barrier, thermal and mechanical properties of plasticized gelatin films. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*. 2010; 11 (2), 369-375.

Rhim, J. W., Hong, S. I., Park, H. M., & Ng, P. K. Preparation and characterization of chitosan-based nanocomposite films with antimicrobial activity. *Journal of agricultural and food chemistry*, 2006; 54(16), 5814-5822.

Rajaie, A., Shokrchizadeh, H. Investigation of physical and mechanical properties of edible film prepared from opopanax gum (*Commiphora guidottii*). 2018. 16 (91), 323-335.

Shojaee-Aliabadi, S., Hosseini, H., Mohammadifar, M.A., Mohammadi, A., Ghasemiou, M., Hosseini, S.M & Khaksar, R. Characterization of carrageenan films incorporated plant essential oil with improved antimicrobial activity. *Carbohydrate polymers*: 2014; 101, pp. 582-591.

Tabari, F., Rezaei, M., Aryaee, P and Abdullahi. Evaluation of some physical and mechanical properties of carboxymethyl cellulose/tragacanth Edible film. *Iranian Food Science and Technology Research Journal*. 2016 12 (1), 88-97.

Tongnuanchan, P., Benjakul, S., Prodparn, T., Pisuchpen, S., & Osako, K. Mechanical, thermal and heat sealing properties of fish skin gelatin film containing palm oil and basil essential oil with different surfactants. *Food Hydrocolloids*, 2016 56, 93-107.

Wang, L., Auty, M. A., & Kerry, J. P. Physical assessment of composite biodegradable films manufactured using whey protein isolate, gelatin and sodium alginate. *Journal of Food Engineering*: 2010; 96(2), 199-207.

Yoksan, R., & Chirachanchai, S. Silver nanoparticle-loaded chitosan–starch based films: Fabrication and evaluation of tensile, barrier and antimicrobial properties. *Materials Science and Engineering:* 2010; C, 30(6), 891-897.

Zhang, M., Li, X.H., Gong, Y.D., Zhao, N.M & Zhang, X.F. Properties and biocompatibility of chitosan film modified by blending with PEG. *Bio mater*: 2002; 23, 2641-2648.

Iranian Food Science and Technology Research Journal
Vol. 17, No. 2, June. July. 2021, p. 287- 297

نشریه پژوهشهای علوم و صنایع غذایی ایران
جلد ۱۷، شماره ۲، خرداد-تیر ۱۴۰۰ ص.۲۹۷-۲۸۷

Preparation of biodegradable carboxymethyl cellulose-Arabic gum composite film and evaluation of the physical, mechanical and thermal properties

A. Rezaei[1], M. Rezaei[*1], M. Alboofetileh[2]

Received: 2020.03.02
Accepted: 2020.06.06

Introduction: Films with appropriate mechanical properties and low permeability are very important for food packaging. Natural polymers have gained increasing attention for the development of biodegradable films due to the environmental problems caused by petroleum-based polymers. Carboxymethyl cellulose (CMC) is a linear polysaccharide that exhibited good film forming properties. Gum Arabic (GA) is another polysaccharide that can be used for preparing the edible and biodegradable films. However, several studies have shown that biopolymers like CMC and GA films have high water vapor permeability and poor mechanical properties in moist conditions. One of the strategies that can be used for improving the properties of biopolymers films is blending the different polymers and formation the composite films. Various studies on the preparation of biocomposite films have been performed, however, to the best of our knowledge, studies on combinations of the CMC and AG have not been reported yet. Thus, the main objectives of this study were to prepare CMC/AG composite films using solvent casting method and investigate the effect of different CMC/AG blending ratio on the physical (water vapor permeability (WVP), water contact angle (WCA), color, opacity and light-barrier properties), mechanical and thermal properties. Furthermore, in order to determine the structural characteristics of the films, fourier-transform infrared spectroscopy (FT-IR) and x-ray diffraction (XRD) measurements were also performed.

Material & Method: The CMC and AG solutions were prepared by dissolving 1 g in 100 mL of distilled water at 45 °C for 24 h under magnetic stirring. The prepared solutions were then blended in different proportions (75:25, 50:50, and 25:75). After mixing, glycerol (0.3% w/w) was added as a plasticizer and the solution was stirred for 15 min. The prepared solutions were poured into a glass plate, then dried at 45 °C for 24 h in the oven. Finally, the properties of CMC, GA and composite films were determined.

Result and Discussion: In this study, biodegradable films composed of CMC and AG were successfully prepared. Results showed that some properties of the composite films were greatly influenced by addition of AG. So that, WVP of films was decreased significantly in the blend films and the lowest WVP was observed in the 25:75 (AG: CMC) films ($p<0.05$). The films hydrophobicity was significantly increased from 41.33° to 61.10° by addition of AG to the CMC films ($p<0.05$). With increasing the ratio of AG, the tensile strength (TS) of blend films decreased. Opacity and light transmission of the composite films increased and decreased, respectively with increasing the AG ratio. The differential scanning calorimetry (DSC) test demonstrated that the thermal properties of blend films improved with increasing the AG content. The FT-IR analysis indicated that new interaction was generated between the components of the blend films. Generally, it can be concluded that blending the AG and CMC can improve some of the physico-mechanical properties of the blend films

Keywords: Composite film, Carboxymethyl cellulose, Arabic gum, Biodegradable film

۱ Department of Seafood Processing, Faculty of Marine Sciences, Tarbiat Modares University, Noor, Iran

2 Inland Water Aquaculture Research Center, Iranian Fisheries Science Research Institute, Agricultural Research, Education and Extension Organization (AREEO), Bandar Anzali, Iran.
(*Corresponding Author Email: rezaie_ma@modares.ac.ir)